

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2003-033646

(43)Date of publication of application : 04.02.2003

---

(51)Int.Cl.

B01J 19/08  
C25B 11/03  
C25B 11/06  
F01N 3/08

---

(21)Application number : 2001-225034

(71)Applicant : NATIONAL INSTITUTE OF  
ADVANCED INDUSTRIAL &  
TECHNOLOGY  
FINE CERAMICS RESEARCH  
ASSOCIATION

(22)Date of filing : 25.07.2001

(72)Inventor : TANNO MASANOBU  
FUJISHIRO YOSHINOBU  
KO KAICHIN  
SERUGEI BREDIKHIN  
MATSUDA KAZUYUKI  
MAEDA KUNIHIRO  
KANAI TAKAO  
MIYATA MOTOYUKI

---

(54) CHEMICAL REACTOR

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a chemical reactor effective for environmental cleaning.

SOLUTION: The chemical reactor for cleaning materials to be treated by a chemical reaction, which comprises an electrochemical cell consisting of a three-layered structure of a cathode, a solid electrolyte and an anode, has the structure distributed with electron conductors and ion conductors like networks tightly stuck to each other at sizes from nanometers to microns or below by enclosing through-holes of nanometer sizes as the internal structure of the cathode and makes the higher efficiency of the electrochemical reaction possible and the method of cleaning NO<sub>x</sub> by using this chemical reactor.

## \* NOTICES \*

JP0 and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

---

## CLAIMS

---

### [Claim(s)]

[Claim 1]Are a chemical reactor which purifies quality of a processed material by a chemical reaction, and A cathode (anode), A chemical reactor, wherein it comprises an electrochemical cell which consists of a three-tiered structure of a solid electrolyte and an anode (negative pole) and the above-mentioned cathode comprises a conductor containing continuation fine pores which nano size penetrated in three dimensions.

[Claim 2]The chemical reactor according to claim 1, wherein said cathode consists of material which consists of a conductive oxide, metal, their own composites of these both, or both composite.

[Claim 3]The chemical reactor according to claim 1, wherein said cathode contains metal and/or an oxide which have conductivity for an inorganic solid material which has oxygen ion conductivity as an ion conductor as an electronic conductor.

[Claim 4]The chemical reactor according to claim 1, wherein said solid electrolyte is an oxygen ion conductor.

[Claim 5]The chemical reactor according to claim 1 which fine pores contained in said cathode have a diameter of 100 nm or less, and is characterized by being continuously distributed from the surface to the cathode lower part.

[Claim 6]The chemical reactor according to claim 5, wherein fine pores contained in said cathode occupy 10 or more percents by volume of a cathode.

[Claim 7]The chemical reactor according to claim 1 or 3 making it generate when continuation fine pores of said cathode heat-treat a conductor, or an electronic conductor and an ion conductor.

[Claim 8]The chemical reactor according to claim 1 containing conductive electrodes of a composite construction which said cathode was classified into the upper part and the lower part, and equipped the cathode lower part with the characteristic of conductive and ion-conductive both.

[Claim 9]The chemical reactor according to claim 3, wherein a volume ratio of an ion conductor and an electronic conductor in the cathode lower part is in the range of 3:7-7:3.

[Claim 10]Quality of a processed material by the chemical reactor according to any one of claims 1 to 9 is decomposed, Are the method of purifying, said quality of a processed material is nitrogen oxides, and current is impressed to said electrochemical cell, A purification method of quality of a processed material which returns nitrogen oxides in an electronic conductor in said cathode, makes oxygen ion generate, makes this conduct in an ion conductor, reduces a relative amount to a nitrogen-oxides gas

molecule of an oxygen gas molecule in a reaction field, and is characterized by disassembling nitrogen oxides.

## \* NOTICES \*

JP0 and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

---

## DETAILED DESCRIPTION

---

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention]This invention relates to the chemical reactor for performing the chemical reaction of quality of a processed material, such as nitrogen oxides.

It is related with the chemical reactor which it decomposes efficiently and can purify nitrogen oxides, and the method of purifying nitrogen oxides by using the chemical reactor in detail from the combustion gas containing oxygen, for example.

[0002]

[Description of the Prior Art]Purification of the nitrogen oxides by which it is generated from a gasoline engine has a method in use by a ternary system catalyst now. However, there are lean burn conditions which make fuel consumption improvement possible, and a problem that the surface activity of a catalyst decreases sharply by adsorption of coexistence oxygen in a diesel power plant, therefore methods, such as purification by the intermittent reducing condition by an oxygen occlusion type catalyst, are adopted.

[0003]On the other hand, removing out of a system is also performed by sending current there using the solid-electrolyte membrane which has oxygen ion conductivity, without carrying out surface poisoning of the oxygen molecule in exhaust gas. By impressing voltage to the solid electrolyte into which both sides were inserted by the electrode as what is proposed as a catalytic-reaction machine, surface adsorption oxygen and nitrogen oxides are disassembled into oxygen and nitrogen, and what is called a system that carries out pumping and is removed from the reaction surface is proposed in oxygen. if a prior art reference is shown here -- J. Electrochemical Soc., 122, and 869 (1975) -- \*\*\*\*. It is shown by by forming a platinum electrode in both sides of the zirconia stable by scandium oxide, and impressing voltage that nitrogen oxides decompose into nitrogen and oxygen. To J. Chem. Soc. Faraday Trans., 91, and 1995 (1995). It is shown by by forming a palladium electrode in both sides of the zirconia stable by yttria, and impressing voltage that nitrogen oxides decompose into nitrogen and oxygen into the mixed gas of nitrogen oxides, hydrocarbon, and oxygen.

[0004]However, such a system has the problem that a considerable amount of current supply sources from the outside are required, for oxygen pumping. Namely, when reacting by the probability of an

oxygen molecule that the oxygen deficiency in a crystalline lattice, etc. will be adsorbed being larger than a nitrogen-oxides molecule. The current for removing this adsorption oxygen molecule out of the system of reaction beginning was needed, and when the point of reducing reaction efficiency greatly put this system in practical use, it had become a serious obstacle.

[0005] Then, in order to solve the above-mentioned problem and to make pouring of electric power required for oxygen pumping into the minimum, when performing catalytic reaction, the required amount of oxygen pumping is controlled, and it is necessary to attain adsorption of nitrogen oxides and efficient-ization of a decomposition reaction. For that purpose, although it is one method to raise the selective adsorption characteristic to the nitrogen-oxides molecule in the catalyst material surface used, The old place, the material in which selectivity higher than an oxygen molecule is shown to a nitrogen-oxides molecule was not obtained, but efficient-ization of the reaction as comprehensive performance by structure control was called for.

[0006]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] In such a situation, this invention persons make the minimum pouring of electric power required for oxygen pumping in view of the above-mentioned conventional technology, And the result of having repeated research wholeheartedly for the purpose of developing the new art which can attain adsorption of nitrogen oxides and efficient-ization of a decomposition reaction, By returning nitrogen oxides in the electronic conductor in the cathode of a chemical reactor, making oxygen ion generate, making this conduct in an ion conductor, and carrying out pumping to the anode side, Before arriving at the reaction field of adsorption-purification, by reducing oxygen gas molecularity enough, it finds out that the desired end can be attained and came to complete this invention. An object of this invention is to provide the chemical reactor for performing the chemical reaction of quality of a processed material, such as nitrogen oxides. An object of especially this invention is to disassemble nitrogen oxides efficiently from the combustion gas containing oxygen, and to provide the purification method of the nitrogen oxides using the chemical reactor which can be purified, and this chemical reactor.

[0007]

[Means for Solving the Problem] This invention for solving an aforementioned problem comprises the following technical means.

- (1) It is a chemical reactor which purifies quality of a processed material by a chemical reaction, A chemical reactor, wherein it comprises an electrochemical cell which consists of a three-tiered structure of a cathode (anode), a solid electrolyte, and an anode (negative pole) and the above-mentioned cathode comprises a conductor containing continuation fine pores which nano size penetrated in three dimensions.
- (2) A chemical reactor given in the above (1), wherein said cathode consists of material which consists of a conductive oxide, metal, their own composites of these both, or both composite.
- (3) A chemical reactor given in the above (1), wherein said cathode contains metal and/or an oxide which have conductivity for an inorganic solid material which has oxygen ion conductivity as an ion conductor as an electronic conductor.
- (4) A chemical reactor given in the above (1), wherein said solid electrolyte is an oxygen ion conductor.

- (5) A chemical reactor given in the above (1) in which fine pores contained in said cathode have a diameter of 100 nm or less, and are characterized by being continuously distributed from the surface to the cathode lower part.
- (6) A chemical reactor given in the above (5) in which fine pores contained in said cathode are characterized by occupying 10 or more percents by volume of a cathode.
- (7) A chemical reactor the above (1) making it generate when continuation fine pores of said cathode heat-treat a conductor, or an electronic conductor and an ion conductor, or given in (3).
- (8) A chemical reactor given in the above (1) containing conductive electrodes of a composite construction which said cathode was classified into the upper part and the lower part, and equipped the cathode lower part with the characteristic of conductive and ion-conductive both.
- (9) A chemical reactor given in the above (3), wherein a volume ratio of an ion conductor and an electronic conductor in the cathode lower part is in the range of 3:7-7:3.
- (10) Quality of a processed material by a chemical reactor of a statement is decomposed into either of (9) from the above (1), Are the method of purifying, said quality of a processed material is nitrogen oxides, and current is impressed to said electrochemical cell, A purification method of quality of a processed material which returns nitrogen oxides in an electronic conductor in said cathode, makes oxygen ion generate, makes this conduct in an ion conductor, reduces a relative amount to a nitrogen-oxides gas molecule of an oxygen gas molecule in a reaction field, and is characterized by disassembling nitrogen oxides.

[0008]

[Embodiment of the Invention]Next, it explains still in detail about this invention. In the catalyst-electrode layer portion which this invention is a chemical reactor for performing the chemical reaction of quality of a processed material, such as nitrogen oxides, for example, manages a reaction when performing the chemical reaction for processing the substance (in this case, nitrogen oxides) used as a polluter, It is a chemical reactor which comprises an electrochemical cell which has a structural feature which enables efficient-ization of a reaction. When this invention persons do not have the selective adsorption nature which exceeds an oxygen molecule to a nitrogen-oxides molecule as a surface physical property, As a result of the contribution to catalytic reaction promoting adsorption of an oxygen molecule in a low portion, even if an oxygen molecule does not already exist at a catalytic-reaction place or it exists, for low concentration, That the rate of selective adsorption to a nitrogen-oxides molecule improves substantially, and the current route which supplies electric power required for an oxygen pumping reaction to a catalyst-electrode layer portion further, Current efficiency required for purification of the above-mentioned nitrogen oxides found out that the wonderful improvement which reaches by several times the peak price reported until now was shown by arranging both ion conduction courses at the time of the ionized oxygen being removed from a reaction field in a suitable form.

[0009]That is, the current amount which oxygen pumping takes depends for the oxygen molecule which carries out surface adsorption selectively on what pumping is carried out efficiently. Therefore, in the case of the automobile engine exhaust gas (lean burn conditions, diesel-rolling-stock exhaust gas, etc. which are especially used as bad mileage operation) with which the number of oxygen gas molecules becomes extensive to cleaning reaction target gas (for example, nitrogen oxides), in order

to work this system, a big current amount is needed. In order to reduce impression of current, methods, such as stopping an apparent required current amount, can be considered by reducing the relative amount to the nitrogen-oxides gas molecule of the oxygen gas molecule in (2) reaction fields which improves the selectivity of the nitrogen-oxides gas molecule over (1) oxygen gas molecule. Although it depends for the method of the above (1) on the surface physical property of material, the material which still reveals this mechanism fully is not obtained. This invention aims at solution of this technical problem by developing the fine structure which makes the conditions of the above (2) possible. That is, before the selective adsorption nature of nitrogen oxides to an oxygen molecule used the low thing conversely and arrived at the reaction field of adsorption-purification, the conditions of the above (2) were effectually realized by making it possible to reduce oxygen gas molecularity enough.

[0010]The chemical reactor of this invention comprises an electrochemical cell which consists of a three-tiered structure of a cathode (anode), a solid electrolyte, and an anode (negative pole). And the above-mentioned cathode has the following composition.

- 1) It comprises a conductor containing the continuation fine pores which nano size penetrated in three dimensions.
- 2) It consists of material which consists of a conductor oxide, metal, their own composites of these both, or both composite.
- 3) The metal and/or the oxide which have conductivity for inorganic solid materials which have oxygen ion conductivity as an ion conductor, such as an oxide and a halogenide, as an electronic conductor are included.
- 4) An ion conductor and an electronic conductor are preferably distributed from NANOMETORU in the shape of [ which was mutually stuck in the size below a micron ] a network.

Namely, in the chemical reactor which has a three-tiered structure of a cathode, a solid electrolyte, and an anode as shown in structural drawing of drawing 1, When the fine pores which nano size penetrated in three dimensions are distributed over the whole cathode, In the same layer upper part, the selective adsorption to the nano hole wall surface of an oxygen molecule is efficient, and it is promoted, and when gas reaches the same layer lower part which mainly bears the adsorption-decomposition reaction of nitrogen oxides, the number of nitrogen-oxides molecules comes to stand high in gas. As a result, although the adsorption decomposition ratio of oxygen/nitrogen oxides does not change but there is priority to an oxygen molecule, the adsorption decomposition efficiency of nitrogen oxides improves by leaps and bounds.

[0011]the aperture to the size of a gas molecule, and a hole -- a hole [ as opposed to / when merit is taken into consideration, in order to acquire an above-mentioned effect, have 100 nm or less of apertures / 30 nm or less in / desirably at the maximum, and / a real soma ] -- it is preferred as a volume fraction of a portion that they are 10 or more percents by volume. For example, it receives that the current efficiency over the nitrogen oxides under 2% oxygen coexistence reaches to not less than 2.4% when the whole cathode layer thickness produces the cell which has mixed oxide-metallic cathodes which are 7 micrometers, and an aperture is 10-20 nm, In 30 nm, it decreases rapidly about 1.7%, and decreases rapidly to 1% or less in 50 nm, and most contribution to the current efficiency by an adsorption effect [ in / experimentally / fine pores ] is not accepted in a not less than 100-nm hole.

When hole volume is made into less than 10 percents by volume, the decomposition efficiency itself does not reach the appearance to 50% due to a reaction surface area fall.

[0012]In order the electrochemical reaction in a cathode is efficient and to perform it desirably, it is having simultaneously the structure for it being efficient and performing electrochemical reaction further, in the wall surface of the conductive layer which forms a nano hole. That is, it is desirable to distribute as finely as possible the electronic conductor which bears the role which conveys the electron given to the oxygen molecule to which it stuck from the cathode lower part in the shape of a three-dimensional network. Here, as the above-mentioned electronic conductor, it is preferred that metal, such as conductive oxides, such as nickel oxide and copper oxide, nickel, and platinum, and both mixture are chosen from the electric conduction characteristic and chemical stability.

[0013]It is having desirably the above-mentioned electronic conductor and the ion conductor which exist closely and which made and carried out homogeneity detailed distribution of the three-dimensional network structure similarly. By this, an electron will be received from the above-mentioned electronic conductor, and pumping of the generated oxygen ion will be easily carried out through a solid electrolyte to the anode side according to the potential difference of an electrochemical cell from a cathode. Perovskite oxides in which the high conductivity over oxygen ion is shown as the above-mentioned ion conductor here, such as lantern strontium calcium manganese or iron oxide, Yttria stabilized zirconia, scandia stabilized zirconia, samarium, or gadolinium addition Seria is preferred.

[0014]Below micron size the both sides of an electronic conductor and an ion conductor with three-dimensional network shape desirably, It is also possible to use mixed conductors, such as a lantern strontium manganic acid ghost having an electron and ion conductivity other than carrying out fine dispersion to nanometer order. It becomes possible to reduce the required current to the whole cathode by having an electrode layer which is distributed over the cathode bottom in the form which does not bar the oxygen ion conduction from the above-mentioned ion conductor and which supplies an electron to an electronic conductor. In this case, as an electrode layer, since chemical stability and high conductivity are searched for, platinum, nickel, etc. are preferred.

[0015]As a method for forming such the fine structure, control of 1000-1600 \*\* heat treatment to an electronic conductor and an ion conductor and this heat treatment temperature is effective suitably. For example, the above-mentioned nickel oxide zirconia mixed oxide is received, It is possible for the desirable fine structure to be formed by heat treatment at 1400 \*\* or 1450 \*\*, and to make the same fine structure appear at 1300 \*\* to above-mentioned lantern strontium calcium manganese or iron oxide by it.

[0016]On the other hand, in electrochemical cell structure, the role which the catalyst-electrode layer lower part should play is supplying the course of the high ion conductivity which carries out pumping of the oxygen which made easy supply of current required for an oxygen pumping reaction, and was generated. Therefore, it is preferred to optimize the quantitative ratio of an electronic conductor and an ion conductor to perform a current supply source effectively, and for the course of high ion conduction approach and exist and a presentation. Although a suitable value is obtained from the mixed state of two different phases in 3:7-7:3, since it is greatly dependent on the coexistence state of two phases, the ratio of an ion conductor and an electronic conductor should just determine the



optimum value suitably according to the coexistence state of two phases. For example, in the case of the complex tissue of two different phases in several 10 which makes effective oxygen pumping possible - number 100 nanometer order, the optimum percentage is the ion conductor 6:electronic conductor 4.

[0017]

[Function]This invention is characterized by comprising an electrochemical cell which consists of a three-tiered structure of a cathode, a solid electrolyte, and an anode, and constituting from a conductor containing the continuation fine pores in which nano size penetrated the above-mentioned cathode in three dimensions.

What the above-mentioned cathode consists of a conductive oxide, metal, their own composites of these both, or both composite, In [ the above-mentioned cathode is characterized by including an ion conductor (inorganic solid material which has oxygen ion conductivity), and an electronic conductor (the metal and/or the oxide which have conductivity), and ] the electronic conductor in the above-mentioned cathode, By reducing the relative amount to the nitrogen-oxides gas molecule of the oxygen gas molecule in a reaction field by returning nitrogen oxides, making oxygen ion generate, making this conduct in an ion conductor, and carrying out pumping to the anode side. An apparent required current amount is stopped, current efficiency required for the above-mentioned nitrogen-oxides purification is raised remarkably, and it becomes possible to disassemble and purify nitrogen oxides.

The electronic conductor which bears the role which conveys the electron given to the oxygen molecule to which it stuck especially from the cathode lower part, It becomes possible for the electrochemical reaction in a cathode to be efficient and to perform it by being fine as much as possible in the shape of a three-dimensional network, and below micron size carrying out fine dispersion of either or the both sides of an ion conductor which shows the high conductivity over oxygen ion to nanometer order desirably.

[0018]

[Example]Next, although this invention is concretely explained based on an example, this invention is not limited at all by the example concerned.

The example 1 yttria 8 mol % addition zirconia sintered compact was used as the solid electrolyte, and zirconia and platinum were mixed on the one side, and by screen-stencil, membranes were formed so that it might become about 20 microns of thickness after calcination on a solid electrolyte. On the mixed layer of the formed ion conductor-electronic conductor, further, preferential grinding of the nickel oxide zirconia mixed layer which constitutes the catalyst-electrode layer upper part was carried out at a rate of the nickel oxide 4:zirconia 6, and it was formed by screen-stencil in a similar manner. The platinum electrode was printed for this on the field of the opposite hand after calcination at 1450 \*\*. This electrochemical cell is installed into the tubular electric furnace held in temperature of 600 \*\* - 800 \*\*, The flow of the sample gas (the NO<sub>x</sub> concentration of 1000 ppm, 2% of the amount of coexistence oxygen, base gas: argon) is carried out by a part for 50-ml/, Even when the relation between the amount of decomposition of nitrogen oxides and the pouring electric power to a cell was investigated and it was 600 \*\* with low efficiency since resistance of a solid electrolyte is the highest, the pouring electric energy to the cell required for 50% disassembly of nitrogen oxides was 0.4 W (it

is [ 1 cm of cell reaction surface product <sup>2</sup>, and the following ] the same).

[0019]Zirconia which added 10 mol of example 2 scandium-oxide % and yttria 1 mol % was used as the solid electrolyte, and zirconia and platinum were mixed by the same method as Example 1.

Mechanochemical activation is performed simultaneously with minuteness making, and it enabled it to secure a conductive path enough also with a small amount of platinum by carrying out preliminary grinding of zirconia and the platinum in that case. It is using the lantern strontium cobalt iron oxide (abbreviation: LSCF) which is a mixed conductor as the catalyst-electrode layer upper part unlike the mixed oxide layer used in Example 1, and improvement in electronic supply required for efficient electrochemical reaction and oxygen ion transport properties was aimed at. The upper layer was formed by screen-stencil by having considered the pulverizing sample as the paste, it burned at 1300 \*\*, and platinum was further applied and calcinated to the opposite side. As a result of performing the cleaning reaction by current impression, 50% of the decomposition efficiency of nitrogen oxides was reached in the impressed electromotive force of 2.9 volts (0.5 W of electric power) (cell operating temperature of 600 \*\*).

[0020]the ultrafine particle of example 3 samarium -- 10-mol % -- the added Seria sintered compact was used as the solid electrolyte, and the paste which carried out pulverizing mixing of zirconia and the platinum was applied to one side. The paste which mixed and prepared metallic nickel and Seria in inactive gas was applied on it, and membranes were formed by spreading so that it might become about 30 microns of thickness after calcination. The wolfram electrode was vapor-deposited to the field of the opposite hand after calcination. It is sample gas (the NO<sub>x</sub> concentration of 1000 ppm and 2% of the amount of coexistence oxygen) to this electrochemical cell. Base gas: When the flow of the argon was carried out by a part for 50-ml/and the relation between the amount of decomposition of nitrogen oxides and the pouring electric power to a cell was investigated, at the cell operating temperature of 600 \*\*, the pouring electric energy to the cell required for 50% disassembly of nitrogen oxides was 0.38 W.

[0021]example 4 gadolinium powder -- 20-mol % -- the added Seria sintered compact was used as the solid electrolyte, and it was obtained by carrying out the pyrolysis of the coprecipitation granular material compounded from the zirconium oxychloride solution and the platinum chloride solution on one side -- very -- homogeneity -- detailed particles, [ slur and ] The organic solvent was added, the paste was produced, and it applied to the solid electrolyte surface, and printed at 600 \*\*. Using a metal alkoxide solution as a starting material, the precursor of the lantern strontium manganic acid ghost was formed by spin coating, and the precise cathode layer was formed with 1350 \*\* heating. About the electrochemical cell produced by the opposite side by forming a platinum electrode, the nitrogen-oxides purification performance which used the two-room type chamber was evaluated. At the electrochemical cell operating temperature of 600 \*\*, it is sample gas (the NO<sub>x</sub> concentration of 1000 ppm). 3% of the amount of coexistence oxygen, base gas: When the flow of the argon was carried out by a part for 50-ml/and the relation between the amount of decomposition of nitrogen oxides and the pouring electric power to a cell was investigated, the pouring electric energy to the cell required for 50% disassembly of nitrogen oxides was 0.32 W.

[0022]In example 5 Example 1, the nickel oxide zirconia layer and the anode were formed by the same process in the zirconia platinum layer formed on a solid electrolyte using the paste mixed

homogenously at a rate of the zirconia 6:platinum 4. It was possible to have reduced the sample similarly produced by calcination at 1450 °C to about the half of 0.25 W and Example 1 with the same test method, at 600 °C, when the amount of required supply current to the decomposition performance of the nitrogen oxides under 2% oxygen coexistence and the cell at the time of an operation is investigated.

[0023]

[Effect of the Invention]As explained in full detail above, this invention is a chemical reactor which purifies the quality of a processed material by a chemical reaction, It comprises an electrochemical cell which consists of a three-tiered structure of a cathode (anode), a solid electrolyte, and an anode (negative pole), and the above-mentioned cathode is applied to the chemical reactor comprising a conductor containing the continuation fine pores which nano size penetrated in three dimensions. According to this invention, the following effects are done so.

- (1) The new chemical reactor which makes it possible to be efficient and to perform an environmental clean-up operation of disassembly of the nitrogen oxides by electrochemical reaction, etc. also under oxygen coexistence conditions can be provided.
- (2) Since the quality of a processed material can be processed efficient, when processing the quality of a processed material, a required current amount can become less, and the power consumption of a chemical reactor can be reduced.
- (3) In this invention, since it is possible also under oxygen coexistence to activate the adsorption site of a gas molecule continuously, it can be used by combining other catalyst substances as a reactor which purifies various environmental pollutants, such as hydrogen sulfide.
- (4) The efficient oxidation reaction machine to the possible reactor of it being efficient and separating oxygen out of mixed gas, and the gas using the generated oxygen being activity, a fluid, and a solid can be provided.

---

[Translation done.]

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号  
特開2003-33646  
(P2003-33646A)

(43)公開日 平成15年2月4日(2003.2.4)

(51)Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テーマコード*(参考)
B 0 1 J 19/08		B 0 1 J 19/08	A 3 G 0 9 1
C 2 5 B 11/03		C 2 5 B 11/03	4 G 0 7 5
	11/06		A 4 K 0 1 1
F 0 1 N 3/08		F 0 1 N 3/08	Z

審査請求 有 請求項の数10 O L (全 7 頁)

(21)出願番号 特願2001-225034(P2001-225034)

(22)出願日 平成13年7月25日(2001.7.25)

特許法第30条第1項適用申請有り 2001年3月21日 社団法人日本セラミックス協会発行の「2001年年会講演予稿集」に発表

(出願人による申告) 国等の委託研究の成果に係る特許出願(平成13年度、経済産業省、中小企業産業技術研究開発委託研究、産業活力再生特別措置法第30条の適用を受けるもの、及び、平成13年度、経済産業省、新エネルギー・産業技術総合開発機構委託研究「シナジーセラミックス」、産業活力再生特別措置法第30条の適用を受けるもの)

(71)出願人 301021533

独立行政法人産業技術総合研究所  
東京都千代田区霞が関1-3-1

(71)出願人 595167889

ファインセラミックス技術研究組合  
東京都港区虎ノ門3丁目7番10号

(72)発明者 淡野 正信

愛知県名古屋市中北区平手町1-1 独立行政法人産業技術総合研究所中部センター内

(74)代理人 100102004

弁理士 須藤 政彦

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 化学反応器

(57)【要約】

【課題】 環境浄化に有効な化学反応器を提供する。

【解決手段】 化学反応により被処理物質の浄化を行う化学反応器であって、カソード(陽極)、固体電解質、アノード(陰極)の3層構造よりなる電気化学セルから構成され、かつカソードの内部構造として、ナノメートルサイズの貫通孔を取り巻いて、電子伝導体とイオン伝導体がナノメートルからミクロン以下のサイズで相互に密着したネットワーク状に分布する構造を有すること、電気化学反応の効率化を可能とする化学反応器、及びその化学反応器を用いることにより窒素酸化物を浄化する方法。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 化学反応により被処理物質の浄化を行う化学反応器であって、カソード（陽極）、固体電解質、アノード（陰極）の3層構造よりなる電気化学セルから構成され、上記カソードがナノサイズの3次元的に貫通した連続細孔を含む導電体より構成されていることを特徴とする化学反応器。

【請求項2】 前記カソードが、導電性酸化物、金属、この両者の各々の複合物、又は両者の複合物からなる材料よりなることを特徴とする、請求項1に記載の化学反応器。

【請求項3】 前記カソードが、イオン伝導体として酸素イオン伝導性を有する無機固体材料を、電子伝導体として導電性を有する金属及び／又は酸化物を含むことを特徴とする、請求項1に記載の化学反応器。

【請求項4】 前記固体電解質が、酸素イオン伝導体であることを特徴とする、請求項1に記載の化学反応器。

【請求項5】 前記カソードに含まれる細孔が、100nm以下の径を有し、表面からカソード下部まで連続して分布することを特徴とする、請求項1に記載の化学反応器。

【請求項6】 前記カソードに含まれる細孔が、カソードの10体積パーセント以上を占めることを特徴とする、請求項5に記載の化学反応器。

【請求項7】 前記カソードの連続細孔が、導電体又は電子伝導体・イオン伝導体を熱処理することにより生成させたものであることを特徴とする、請求項1又は3に記載の化学反応器。

【請求項8】 前記カソードが、上部と下部に区別され、カソード下部に、導電性及びイオン伝導性の両方の特性を備えた、複合構造の導電性電極を含むことを特徴とする、請求項1に記載の化学反応器。

【請求項9】 カソード下部における、イオン伝導体と電子伝導体の体積比率が3：7～7：3の範囲にあることを特徴とする、請求項3に記載の化学反応器。

【請求項10】 請求項1から9のいずれかに記載の化学反応器による被処理物質を分解し、浄化する方法であって、前記被処理物質が窒素酸化物であり、前記電気化学セルに電流を印加し、前記カソード中の電子伝導体において窒素酸化物を還元して酸素イオンを生成させ、これをイオン伝導体中で伝導させ、反応場における酸素ガス分子の窒素酸化物ガス分子に対する相対量を減らし、窒素酸化物を分解することを特徴とする、被処理物質の浄化方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、窒素酸化物等の被処理物質の化学反応を行うための化学反応器に関するものであり、更に詳しくは、例えば、酸素を含む燃焼排ガスから窒素酸化物を効率的に分解し、浄化することが可

能な化学反応器、及びその化学反応器を使用することにより窒素酸化物を浄化する方法に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】ガソリンエンジンから発生する窒素酸化物の浄化は、現在、三元系触媒による方法が主流となっている。しかし、燃費向上を可能とするリーンバーン条件や、ディーゼルエンジンにおいては、共存酸素の吸着により触媒の表面活性が激減するという問題があり、そのために、酸素吸蔵型触媒による間欠的還元条件による浄化等の方法が採用されている。

【0003】一方、酸素イオン伝導性を有する固体電解質膜を用いて、そこへ電流を流すことにより、排ガス中の酸素分子を表面被毒させることなく系外に除去することも行われている。触媒反応器として提案されているものとして、電極に両面を挟まれた固体電解質に電圧を印加することにより、表面吸着酸素と窒素酸化物を酸素と窒素に分解し、酸素をいわゆるポンピングして反応表面から除去するシステムが提案されている。ここで、先行文献を提示すると、J. Electrochemical Soc., 122, 869, (1975) には、酸化スカンジウムで安定化したジルコニアの両面に白金電極を形成し、電圧を印加することにより、窒素酸化物が窒素と酸素に分解することが示されている。また、J. Chem. Soc. Faraday Trans., 91, 1995 (1995) には、イットリアで安定化したジルコニアの両面にパラジウム電極を形成し、電圧を印加することにより、窒素酸化物と炭化水素、酸素の混合ガス中において、窒素酸化物が窒素と酸素に分解することが示されている。

【0004】しかしながら、このようなシステムは、酸素ポンピングのために外部からの相当量の電流供給が必要であるという問題点を有する。すなわち、酸素分子は、結晶格子中の酸素欠損等に吸着される確率が窒素酸化物分子より大きく、反応を行う際には、始めにこの吸着酸素分子を反応系外に除去するための電流が必要となり、反応効率を大きく低下させている点が、このシステムを実用化する上で大きな障害となっていた。

【0005】そこで、上記問題を解決するには、酸素ポンピングに必要な電力の注入を最小限にするために、触媒反応を行う際に必要な酸素ポンピング量を抑制し、窒素酸化物の吸着及び分解反応の高効率化を図ることが必要となる。そのためには、用いられる触媒材料表面における、窒素酸化物分子への選択吸着特性を向上させることが一つの方法であるが、これまでのところ、窒素酸化物分子に対して酸素分子より高い選択性を示す材料は得られておらず、構造制御による総合性能としての反応の高効率化が求められていた。

## 【0006】

【発明が解決しようとする課題】このような状況の中で、本発明者らは、上記従来技術に鑑みて、酸素ポンピングに必要な電力の注入を最小限にすること、及び窒素

酸化物の吸着及び分解反応の高効率化を図ることが可能な新しい技術を開発することを目標として鋭意研究を積み重ねた結果、化学反応器のカソード中の電子伝導体において窒素酸化物を還元して酸素イオンを生成させ、これをイオン伝導体中で伝導させ、アノード側へポンピングさせることにより、吸着－浄化の反応場に到達する以前に酸素ガス分子数を十分低減させることにより所期の目的を達成し得ることを見出し、本発明を完成するに至った。本発明は、窒素酸化物等の被処理物質の化学反応を行うための化学反応器を提供することを目的とするものである。また、本発明は、特に、酸素を含む燃焼排ガスから窒素酸化物を効率よく分解し、浄化することができる化学反応器と、該化学反応器を用いた窒素酸化物の浄化方法を提供することを目的とするものである。

#### 【0007】

【課題を解決するための手段】上記課題を解決するための本発明は、以下の技術的手段から構成される。

(1) 化学反応により被処理物質の浄化を行う化学反応器であって、カソード（陽極）、固体電解質、アノード（陰極）の3層構造よりなる電気化学セルから構成され、上記カソードがナノサイズの3次元的に貫通した連続細孔を含む導電体より構成されていることを特徴とする化学反応器。

(2) 前記カソードが、導電性酸化物、金属、この両者の各々の複合物、又は両者の複合物からなる材料よりなることを特徴とする、前記(1)に記載の化学反応器。

(3) 前記カソードが、イオン伝導体として酸素イオン伝導性を有する無機固体材料を、電子伝導体として導電性を有する金属及び／又は酸化物を含むことを特徴とする、前記(1)に記載の化学反応器。

(4) 前記固体電解質が、酸素イオン伝導体であることを特徴とする、前記(1)に記載の化学反応器。

(5) 前記カソードに含まれる細孔が、100nm以下の径を有し、表面からカソード下部まで連続して分布することを特徴とする、前記(1)に記載の化学反応器。

(6) 前記カソードに含まれる細孔が、カソードの10体積パーセント以上を占めることを特徴とする、前記(5)に記載の化学反応器。

(7) 前記カソードの連続細孔が、導電体又は電子伝導体・イオン伝導体を熱処理することにより生成させたものであることを特徴とする、前記(1)又は(3)に記載の化学反応器。

(8) 前記カソードが、上部と下部に区分され、カソード下部に、導電性及びイオン伝導性の両方の特性を備えた、複合構造の導電性電極を含むことを特徴とする、前記(1)に記載の化学反応器。

(9) カソード下部における、イオン伝導体と電子伝導体の体積比率が3：7～7：3の範囲にあることを特徴とする前記(3)に記載の化学反応器。

(10) 前記(1)から(9)のいずれかに記載の化学

反応器による被処理物質を分解し、浄化する方法であって、前記被処理物質が窒素酸化物であり、前記電気化学セルに電流を印加し、前記カソード中の電子伝導体において窒素酸化物を還元して酸素イオンを生成させ、これをイオン伝導体中で伝導させ、反応場における酸素ガス分子の窒素酸化物ガス分子に対する相対量を減らし、窒素酸化物を分解することを特徴とする、被処理物質の浄化方法。

#### 【0008】

【発明の実施の形態】次に、本発明について更に詳細に説明する。本発明は、窒素酸化物等の被処理物質の化学反応を行うための化学反応器であって、例えば、環境汚染源となる物質（この場合、窒素酸化物）を処理するための化学反応を行う際に、反応を司る触媒－電極層部分において、反応の高効率化を可能とするような構造上の特徴を有する電気化学セルから構成される化学反応器である。本発明者らは、表面物性として窒素酸化物分子に対して酸素分子を超える選択吸着性を有しない場合、触媒反応への寄与度が低い部分において酸素分子の吸着を促進させる結果、触媒反応場においては既に酸素分子が存在しないか、存在しても低濃度のため、窒素酸化物分子に対する選択吸着率が大幅に向上すること、更に、触媒－電極層部分に、酸素ポンピング反応に必要な電力を供給する電流経路と、イオン化した酸素が反応場から除去される際の、イオン伝導経路の両方を、適当な形で配置することにより、上記窒素酸化物の浄化に必要な電流効率がこれまで報告されている最高値の数倍に達する、驚異的な向上を示すこと、を見いだした。

【0009】すなわち、酸素ポンピングに要する電流量は、選択的に表面吸着する酸素分子を如何に効率的にポンピングするかに依存する。そのため、酸素ガス分子の数が浄化反応対象ガス（例えば、窒素酸化物）に対して大量となる、自動車エンジン排ガス（特に、高燃費運転として用いられるリーンバーン条件やディーゼル車排ガス等）の場合は、このシステムを稼働させるために大きな電流量が必要となる。電流の印加を低減させるためには、(1) 酸素ガス分子に対する窒素酸化物ガス分子の選択性を高める、(2) 反応場における酸素ガス分子の窒素酸化物ガス分子に対する相対量を減らすことで見かけの必要電流量を抑える、等の方法が考えられる。上記(1)の方法は、材料の表面物性に依存するものであるが、未だこのメカニズムを十分に発現する材料は得られていない。本発明は、上記(2)の条件を可能とする微細構造を開発することによりこの課題の解決を図ったものである。すなわち、酸素分子に対する窒素酸化物の選択吸着性が低いことを逆に利用し、吸着－浄化の反応場に到達する以前に酸素ガス分子数を十分低減させることを可能とすることにより、実効的に上記(2)の条件を実現した。

【0010】本発明の化学反応器は、カソード（陽

極)、固体電解質、アノード(陰極)の3層構造からなる電気化学セルから構成される。そして、上記カソードは、以下の構成を有する。

1) ナノサイズの3次的に貫通した連続細孔を含む導電体より構成される。

2) 導電性酸化物、金属、この両者の各々の複合物、又は両者の複合物からなる材料よりなる。

3) イオン伝導体として酸素イオン伝導性を有する酸化物、ハロゲン化物などの無機固体材料を、電子伝導体として導電性を有する金属及び/又は酸化物を含む。

4) 好ましくは、イオン伝導体と電子伝導体がナノメートルからマイクロン以下のサイズで相互に密着したネットワーク状に分布する。

すなわち、図1の構造図に示されるように、カソード、固体電解質及びアノードの3層構造を有する化学反応器において、ナノサイズの3次的に貫通した細孔がカソード全体に分布することにより、同層上部において酸素分子のナノ細孔壁面への選択吸着が高効率で促進され、主として窒素酸化物の吸着・分解反応を担う同層下部にガスが到達する時点では、ガス中に窒素酸化物分子の数が卓越するようになる。その結果、酸素/窒素酸化物の吸着分解比率が変わらず、酸素分子への優先性があるにもかかわらず、窒素酸化物の吸着分解効率は飛躍的に向上する。

【0011】ガス分子の大きさに対する孔径及び孔長を考慮した場合、上述の効果が得られるためには、最大でも100nm以下、望ましくは30nm以下の孔径を有し、実体部に対する孔部分の体積分率として、10体積パーセント以上であることが好ましい。例えば、カソード層の全体層厚が7μmである混合酸化物-金属カソードを有するセルを作製した場合、孔径が10~20nmの場合は2%酸素共存下の窒素酸化物に対する電流効率は2.4%以上に達するのに対して、30nmでは1.7%程度、50nmでは1%以下へと急減し、100nm以上の孔においては、実験的にも、細孔における吸着効果による電流効率への寄与はほとんど認められない。同様に、孔体積を10体積パーセント未満とした場合には、反応表面積低下により分解効率自体が50%に達しない。

【0012】また、望ましくは、カソードにおける電気化学反応が高効率で行われるためには、更に、ナノ細孔を形成する導電層の壁面において、電気化学反応を高効率で行うための構造を同時に有することである。すなわち、吸着した酸素分子に与える電子をカソード下部から輸送する役割を担う電子伝導体が、3次元ネットワーク状にできるだけ細かく分布することが望ましい。ここで、上記電子伝導体としては、酸化ニッケル、酸化銅などの導電性酸化物、ニッケル、白金等の金属、及び両者の混合物が、その導電特性や化学的安定性から選択されることが好ましい。

【0013】更に望ましくは、上記電子伝導体と密接に存在する、同様に3次元ネットワーク構造をなし、均一微細分布したイオン伝導体を有することである。これにより、上記の電子伝導体から電子を受け取り、生成した酸素イオンが、電気化学セルのポテンシャル差に従って、容易にカソードから固体電解質を経てアノード側へポンピングされることとなる。ここで、上記イオン伝導体としては、酸素イオンに対する高伝導性を示すランタノーストロニウム-カルシウム-マンガン又は鉄酸化物等のペロブスカイト酸化物、イットリア安定化ジルコニア、スカンジウム安定化ジルコニア、サマリウム又はガドリニウム添加セリア等が好ましい。

【0014】電子伝導体、イオン伝導体の双方を、3次元ネットワーク形状で、マイクロンサイズ以下、望ましくは、ナノメートルオーダーまで微細分散させることの他に、電子・イオン伝導性を併せ持つ、ランタノーストロニウム-マンガン酸化物等の混合導電体を用いることも可能である。更に、カソード最下部に、上記イオン伝導体からの酸素イオン伝導を妨げない形で分布する、電子伝導体へ電子を供給する電極層を有することにより、カソード全体への必要電流を低減させることが可能となる。この場合、電極層としては、化学的安定性及び高導電性が求められることから、白金、ニッケル等が好ましい。

【0015】このような微細構造を形成するための方法として、好適には、電子伝導体・イオン伝導体に対する1000~1600℃の熱処理と該熱処理温度の制御が有効である。例えば、前述の酸化ニッケル-ジルコニア混合酸化物に対しては、1400℃又は1450℃での熱処理によって、望ましい微細構造が形成され、また、前述のランタノーストロニウム-カルシウム-マンガン又は鉄酸化物に対しては、1300℃で同様の微細構造を出現せしめることが可能である。

【0016】一方、電気化学セル構造において、触媒-電極層下部が果たすべき役割は、酸素ポンピング反応に必要な電流の供給を容易にし、かつ生成した酸素をポンピングする高イオン伝導性の経路を供給することである。そのために、電流供給を効果的にを行い、かつ高イオン伝導の経路が近接して存在するための、電子伝導体及びイオン伝導体の量比及び組成を最適化することが好ましい。イオン伝導体と電子伝導体の比率は、2つの異なる相の混合状態から、3:7~7:3の範囲で好適な値が得られるが、その最適値は、2相の共存状態に大きく依存するので、2相の共存状態に応じて適宜決定すればよい。例えば、効果的な酸素ポンピングを可能とする数10~数100ナノメートルオーダーでの、2つの異なる相の複合組織の場合には、その最適比率は、イオン伝導体6:電子伝導体4である。

【0017】

【作用】本発明は、カソード、固体電解質、アノードの



3層構造よりなる電気化学セルから構成され、上記カソードをナノサイズの3次元的に貫通した連続細孔を含む導電体より構成することの特徴としており、更に、上記カソードは、導電性酸化物、金属、この両者の各々の複合物、又は両者の複合物よりなること、また、上記カソードが、イオン伝導体（酸素イオン伝導性を有する無機固体材料）、電子伝導体（導電性を有する金属及び／又は酸化物）を含むことの特徴としており、上記カソード中の電子伝導体において、窒素酸化物を還元して酸素イオンを生成させ、これをイオン伝導体中で伝導させ、アノード側へポンピングさせることにより、反応場における酸素ガス分子の窒素酸化物ガス分子に対する相対量を減らすことで、見かけの必要電流量を抑え、上記窒素酸化物浄化に必要な電流効率を著しく向上させ、窒素酸化物を分解し、浄化することが可能となる。特に、吸着した酸素分子に与える電子をカソード下部から輸送する役割を担う電子伝導体、酸素イオンに対する高伝導性を示すイオン伝導体のいずれか又は双方を、3次元ネットワーク状にできるだけ細かく、ミクロンサイズ以下、望ましくはナノメートルオーダーまで微細分散させることにより、カソードにおける電気化学反応が高効率で行われることが可能となる。

#### 【0018】

【実施例】次に、実施例に基づいて本発明を具体的に説明するが、本発明は当該実施例によって何ら限定されるものではない。

#### 実施例1

イットリア8モル%添加ジルコニア焼結体を固体電解質とし、その片面に、ジルコニアと白金を混合し、スクリーン印刷により、固体電解質上に、焼成後に膜厚約20ミクロンとなるように成膜した。形成されたイオン伝導体-電子伝導体の混合層の上に、更に、触媒-電極層上部を構成する酸化ニッケル-ジルコニア混合層を、酸化ニッケル4：ジルコニア6の割合で混合粉碎し、同様にスクリーン印刷により形成した。これを1450℃で焼成後、反対側の面に白金電極を焼き付けた。この電気化学セルを600℃～800℃の温度に保持した管状電気炉中に設置し、サンプルガス（NO<sub>x</sub>濃度1000ppm、共存酸素量2%、ベースガス：アルゴン）を50ml/分でフローさせ、窒素酸化物の分解量とセルへの注入電力との関係を調べたところ、最も固体電解質の抵抗が高いために効率が低い600℃の場合でも、窒素酸化物の50%分解に必要なセルへの注入電力量は0.4ワット（セル反応面積1cm<sup>2</sup>、以下同じ）であった。

#### 【0019】実施例2

酸化スカンジウム10モル%、イットリア1モル%を添加したジルコニアを固体電解質とし、実施例1と同様の方法により、ジルコニアと白金を混合した。その際に、ジルコニアと白金を予備粉碎することにより、微細化と同時にメカノケミカルな活性化処理を施し、より少量の

白金によっても導電性パスを十分確保できるようにした。触媒-電極層上部としては、実施例1で用いた混合酸化物層とは異なり、混合導電体であるランタニウム-コバルト-鉄酸化物（略称：LSCF）を用いることで、高効率電気化学反応に必要な電子供給と酸素イオン輸送特性の向上を図った。微粉碎試料をペーストとして、スクリーン印刷により上部層を形成し、1300℃で焼き付けを行い、更に、反対面に白金を塗布し、焼成した。電流印加による浄化反応を行った結果、印加電圧2.9ボルト（電力0.5ワット）で窒素酸化物の分解効率50%に達した（セル作動温度600℃）。

#### 【0020】実施例3

サマリウム超微粒子を10モル%添加したセリア焼結体を固体電解質とし、片面にジルコニアと白金を微粉碎混合したペーストを塗布した。更に、金属ニッケルとセリアを不活性ガス中で混合して調製したペーストをその上に塗布し、焼成後に膜厚約30ミクロンとなるように、塗布により成膜を行った。焼成後、反対側の面にタングステン電極を蒸着した。この電気化学セルにサンプルガス（NO<sub>x</sub>濃度1000ppm、共存酸素量2%、ベースガス：アルゴン）を50ml/分でフローさせ、窒素酸化物の分解量とセルへの注入電力との関係を調べたところ、セル作動温度600℃において、窒素酸化物の50%分解に必要なセルへの注入電力量は0.38ワットであった。

#### 【0021】実施例4

ガドリニウム粉末を20モル%添加したセリア焼結体を固体電解質とし、片面にオキシ塩化ジルコニウム溶液及び塩化白金溶液から合成した共沈粉体を熱分解して得られた、極めて均一微細な粒子をスラリー化して、有機溶媒を加えてペーストを作製し、固体電解質表面に塗布して600℃で焼き付けた。更に、金属アルコキシド溶液を出発物質として用い、スピンコーティングにより、ランタニウム-コバルト-マンガン酸化物の前駆体を成膜し、1350℃加熱により緻密なカソード層を形成した。反対面に白金電極を成膜して作製された電気化学セルについて、2室型チャンバを用いた窒素酸化物浄化性能の評価を行った。電気化学セル作動温度600℃において、サンプルガス（NO<sub>x</sub>濃度1000ppm、共存酸素量3%、ベースガス：アルゴン）を50ml/分でフローさせ、窒素酸化物の分解量とセルへの注入電力との関係を調べたところ、窒素酸化物の50%分解に必要なセルへの注入電力量は0.32ワットであった。

#### 【0022】実施例5

実施例1において、固体電解質の上に形成するジルコニア-白金層において、ジルコニア6：白金4の割合で均一混合したペーストを用い、同様のプロセスにより酸化ニッケル-ジルコニア層及びアノードを形成した。同じく1450℃での焼成により作製した試料を600℃で



同様の試験方法により、2%酸素共存下での窒素酸化物の分解性能と、作動時のセルへの必要供給電流量を調べたところ、0.25ワットと実施例1の半分近くまで低減することが可能であった。

#### 【0023】

【発明の効果】以上詳述したように、本発明は、化学反応により被処理物質の浄化を行う化学反応器であって、カソード（陽極）、固体電解質、アノード（陰極）の3層構造よりなる電気化学セルから構成され、上記カソードがナノサイズの3次元的に貫通した連続細孔を含む導電体より構成されていることを特徴とする化学反応器に係るものであり、本発明によれば、以下のような効果が奏される。

（1）酸素共存条件下でも、電気化学反応による窒素酸化物の分解等の環境浄化作用を、高効率で行うことを可能とする、新規な化学反応器を提供することができる。

（2）被処理物質を高効率に処理できることから、被処理物質を処理する際に必要な電流量が減り、化学反応器

の消費電力を低減することができる。

（3）本発明では、酸素共存下でも、ガス分子の吸着サイトを連続的に活性化することが可能であるため、他の触媒物質を組合せることにより、硫化水素などの様々な環境汚染物質を浄化する反応器として使用することができる。

（4）混合ガス中から酸素を高効率で分離することの可能な反応器、及び生成した酸素が活性であることを利用した気体、液体、及び固体に対する高効率酸化反応器を提供することができる。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の一形態に係る化学反応器を概略的に示す断面図である。

#### 【符号の説明】

- 1 化学反応器
- 2 触媒—電極層（カソード側）
- 3 固体電解質層
- 4 電極層（アノード側）

【図1】



フロントページの続き

- (72)発明者 藤代 芳伸  
愛知県名古屋市北区平手町1-1 独立行政法人産業技術総合研究所中部センター内
- (72)発明者 黄 海鎮  
愛知県名古屋市北区平手町1-1 独立行政法人産業技術総合研究所中部センター内
- (72)発明者 セルゲイ プレディヒン  
愛知県名古屋市守山区下志段味穴ヶ洞2268-1 志段味ヒューマンサイエンスパーク先端技術連携リサーチセンター ファインセラミックス技術研究組合シナジーセラミックス研究所内
- (72)発明者 松田 和幸  
愛知県名古屋市守山区下志段味穴ヶ洞2268-1 志段味ヒューマンサイエンスパーク先端技術連携リサーチセンター ファインセラミックス技術研究組合シナジーセラミックス研究所内

- (72)発明者 前田 邦裕  
愛知県名古屋市守山区下志段味穴ヶ洞2268-1 志段味ヒューマンサイエンスパーク先端技術連携リサーチセンター ファインセラミックス技術研究組合シナジーセラミックス研究所内
- (72)発明者 金井 隆雄  
愛知県名古屋市守山区下志段味穴ヶ洞2268-1 志段味ヒューマンサイエンスパーク先端技術連携リサーチセンター ファインセラミックス技術研究組合シナジーセラミックス研究所内
- (72)発明者 宮田 素之  
愛知県名古屋市守山区下志段味穴ヶ洞2268-1 志段味ヒューマンサイエンスパーク先端技術連携リサーチセンター ファインセラミックス技術研究組合シナジーセラミックス研究所内

F ターム(参考) 3G091 AA02 AA12 AA18 AB09 BA01  
4G075 AA03 AA37 BA05 BB04 BD14  
CA20 CA51 CA54 EC21 FA02  
FA12 FB01 FB02 FC11  
4K011 AA02 AA12 AA36 AA51 AA58  
DA11